

## 論文の内容の要旨

論文題目 Pd(001)上 Fe 超薄膜の構造および電子状態と磁性

Structure, electronic properties and magnetism  
of ultrathin Fe films on Pd(001)

氏名

武市 泰男

---

Fe、Co、Ni に代表される遍歴電子磁性体の強磁性を記述する有効モデルとして局在スピン描像に基づくものが古くから知られているが、電子の遍歴性に忠実なモデルの構築には至っておらずその統一的理解はまだ不十分である。一方で、ナノテク材料の開発と相まって磁性体超薄膜の研究が近年盛んに行われている。磁性体超薄膜は基板との格子ミスマッチや軌道混成、系の低次元性によりバルクとは異なる構造および電子状態を示し、磁気的性質も異なる。そのため、磁性体超薄膜は強磁性の発現機構を探る上でも興味深い物質系である。Fe 超薄膜の磁性の起源を理解するため、本研究では Pd(001)上に成長させた Fe 超薄膜に注目してその構造・電子状態と磁性の関係について系統的に調べた。

Pd(001)の格子定数は bcc-Fe と fcc-Fe の中間領域でやや bcc-Fe 寄りに位置する。この系については電子状態の詳細な議論がほとんどなく、基板の影響による格子歪みを受けた Fe 超薄膜が膜厚に依存してどのような構造をとり、それによって電子状態がどう変化するかは明らかになっていなかった。また Pd 4*d* 電子状態と Fe 3*d* 電子状態との混成や Fe の電子相関が Fe 超薄膜の磁性にどのような影響を与えるか十分評価されておらず、Fe/Pd(001)の磁性に関する研究は多くあるものの Fe と Pd の合金化や薄膜のモーフオロジの問題があり過去の報告に食い違いが多かった。そこで、本研究では layer-by-layer 成長し、かつ合金化の生じていない Fe/Pd(001)を作成して構造および電子状態と磁性の膜厚に依存した系統

的な測定を行い、その関係について考察した。

サンプル作成は蒸着時の温度条件などを慎重に制御しながら行い、反射高速電子線回折や X 線光電子分光などを用いてサンプルの評価を行った。その結果、300 K で蒸着した Fe/Pd(001)は合金化を起こしておらず Fe が Pd(001)上に layer-by-layer で成長していることが確認できた。一方で 3~4 原子層 (monolayer: ML) 以上ではテラス様の成長が徐々に進行していることが示唆されたほか、335 K 以上に昇温すると合金化の兆候が見られた。結晶構造の決定には X 線光電子回折を用いた。その結果 3 ML の Fe 超薄膜は Pd(001)の面内格子定数にコヒーレントに吸着しており、面内方向に縮み、面直方向に伸びた bct 構造をとることが分かった。また、膜厚の増加に伴って bct 構造からバルクと同じ bcc-Fe(001)に向かって格子歪みの緩和が進行することが明らかになり、18 ML でこの緩和がほぼ終了していることも示された。

続いて、スピンおよび角度分解光電子スペクトルを測定し電子状態を直接観察した。清浄 Pd(001)の光電子スペクトルの詳しい測定により、Pd バルクバンドの分散とともに表面共鳴状態が観測された。さらに過去の報告と異なり光電子励起過程における多電子効果が観測されたとは言えず、その大きさを検討するにはスペクトルの解析に用いるバンド計算に注意が必要であることを指摘した。

Fe 超薄膜の電子状態については多くのことが明らかとなった。まず格子歪みの緩和が終了していると考えられる 18 ML-Fe/Pd(001)は、bcc-Fe(001)と同じ電子状態をもっていることが示された。bct 構造をとる緩和の中間領域では格子歪みによって対称性が低下し、バルク Fe では縮退していた 3d バンドに分裂が起こっていることが示された。また光電子スペクトルにバルク Fe と同様の電子-電子相互作用による多電子効果が見られることが明らかになった。1 ML-Fe/Pd(001)の角度分解光電子分光では、Fe 由来の電子状態が Fermi 準位直下と結合エネルギー 2 eV 付近に存在し、特に 2 eV 付近のバンドは弱いながらも面内のバンド分散を示していることが明らかになった。

0.6~2.0 ML では光電子スペクトル強度に基板 Pd からの寄与が大きい、Pd の成分を差し引くことによって Fe 由来の電子状態を得た。このような膜成長の初期過程でも Fe の多数スピン状態は結合エネルギー 2.4 eV、少数スピン状態は Fermi 準位直下に存在し、バルクとさほど変わらない交換分裂をもっていることが明らかとなった。さらにより厚い膜厚領域との比較により、Fe 超薄膜が 1 ML 以下の成長初期から膜厚が増加して三次元系に至るまで、電子状態は交換分裂を保ったまま遍歴性を増してバンド分散を獲得することを示した。

Fe/Pd(001)の磁性については、面内磁化が発現する 1.6 ML 以上において光電子のスピン偏極度の温度依存性を測定することで評価を行った。その結果 1.6、2.0 ML では磁化が温度に対し直線的に近い減少を示すのに対し、3.2、5.9 ML ではよりバルクに近い振る舞いをする事が明らかになった。これらの温度依存性に対して超薄膜における Weiss の分子場近似、およびスピン波の理論を用いた解析を行って、Heisenberg の  $J$ パラメータやスピン

波の *stiffness constant* を求めた。

以上の膜厚に依存した構造、電子状態、磁性の情報について横断的かつ他の *fcc(001)* 上の *Fe* 超薄膜と比較した考察を行った。まず本研究で作成した *Fe/Pd(001)* は合金化がなく *layer-by-layer* 成長しており、電子状態を大きく変えてしまわない程度の格子歪みをもった *Fe* 超薄膜であるために、3.2、5.9 ML でバルク *Fe* と同程度 (21 meV) の Heisenberg の *J* パラメータが得られている点を指摘した。またこの *Fe* 超薄膜でもバルクと同程度の電子相関が働いていること、*Fe* の局所電子状態における交換分裂は格子ミスマッチや基板との混成に対し鈍感であることを明らかにし、*Fe* 超薄膜の磁性を有効モデルで表すためには *intra-atomic* な相関項 (Hubbard の *U*) および交換項 (Hund 則の *J*) を取り入れることが重要であることを示した。また 1.6、2.0 ML で見られたスピン偏極度の温度に対する直線的な振る舞いは、a) *Fe* の膜厚そのものによるのではなく強磁性層の膜厚に依存して現れる、および b) *Fe/Pd(001)* では基板との混成が強いために低次元性を感じにくく、比較的薄い膜厚で二次元的強磁性の性質が出る、という二つの可能性を提案し、その妥当性について検討した。

以上のように、*Fe/Pd(001)* の構造および電子状態と磁性を系統立てて調べることにより、これまで明らかになっていない点の多かった *Fe* 超薄膜の構造と電子状態が磁性に与える影響について考察することができた。また、本研究で行ったように系の磁性を特徴づけるパラメータを構造および電子状態の観点から検討することが、*Fe* 超薄膜の磁性を理解するために重要であることを示した。